



⑮ **BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT**

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 100 42 479 A 1**

⑤① Int. Cl.⁷:
F 23 D 14/18
F 23 D 11/44

⑳ Aktenzeichen: 100 42 479.1
㉔ Anmeldetag: 29. 8. 2000
㉕ Offenlegungstag: 14. 3. 2002

DE 100 42 479 A 1

⑦① Anmelder:
Aral Aktiengesellschaft & Co. KG, 44789 Bochum,
DE

⑦④ Vertreter:
Berg, D., Dr., Pat.-Ass., 45896 Gelsenkirchen

⑦② Erfinder:
Fuder, Franz, Dr., 46236 Bottrop, DE; Guttman,
Hansjürgen, 46514 Schermbeck, DE; Rausch, Dieter,
46359 Heiden, DE

⑤⑥ Entgegenhaltungen:
DE 20 20 408 C3
FR 26 10 390 A1
US 37 34 682
JP 60-0 26 206 A
JP 59-2 08 313 A

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ **Vorrichtung und Verfahren zur katalytischen Oxidation von Brennstoffen**

⑤⑦ Gegenstand der Erfindung ist eine Vorrichtung, bestehend aus
a. mindestens einer Strömungstrecke mit Kapillarwirkung, in der ein flüssiger Brennstoff, vorzugsweise ohne äußeren Druck und nur durch die Kapillarwirkung transportiert wird und am Ende der Kapillare verdampft,
b. einer Mischzone, in der der verdampfte Brennstoff mit zugeführter Luft gemischt wird,
c. einem sich der Mischzone anschließenden, für Gase durchströmbareren Katalysator, in welchem der gasförmige, mit Luft vermengte Brennstoff durch den Luftsauerstoff oxidiert wird,
d. einem Wärmeübertragungsmittel 6 aus einem wärmeleitenden Material, vorzugsweise Metall, das die notwendige Energie zur Verdampfung des flüssigen Brennstoffes aus der Kapillare heraus über das die Kapillare bildende Material dem Brennstoff zuführt.
Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur katalytischen Oxidation von flüssigen Brennstoffen.

DE 100 42 479 A 1

[0001] Gegenstand der Erfindung ist eine Vorrichtung und ein Verfahren zur katalytischen Oxidation von Brennstoffen mit einer Strömungsstrecke, einer Mischzone, einem Katalysator und einem Wärmeübertragungsmittel.

[0002] Aus dem Stand der Technik sind verschiedene katalytische Brenner bekannt. Diese werden eingesetzt zur Umsetzung von Brennstoff-Luft-Gemischen, beispielsweise für Fahrzeugstandheizungen, für die Vorwärmung von Abgaskatalysatoren, für die Verdampfung von Benzin vor der Zufuhr zu einem Verbrennungsmotor oder für die Verdampfung von Brennstoffen vor chemischen Reaktionen in industriellen chemischen Prozessen. Hierzu gehört die Umsetzung von Brennstoffen mit Luft oder Wasser an heterogenen Katalysatoren, beispielsweise zur Erzeugung von Synthesegas bei zusätzlicher Einleitung von Wasser.

[0003] Die DE 195 14 369.8 A1 beschreibt einen katalytischen Brenner für flüssiges Benzin. Dieser umfaßt eine Benzindüse, ein Rohr, auf das das Benzin gesprüht wird, und einen Katalysator, der im Rohr angeordnet ist. Der Brenner wird durch eine elektrische Vorheizung vorgewärmt, danach wird die Benzin- und Luftzufuhr gestartet. Das Benzin verdampft auf der Wand des Rohres und reagiert im Katalysator mit der Luft, wobei Wärme entsteht, die durch direkte Wärmeeinstrahlung die Verdampfung des weiter zugeführten Benzins bewirkt. Bei dieser Vorrichtung wird das Benzin durch Verdüsung auf eine Wand im oberen Teil der Vorrichtung verdampft, wo es mit ebenfalls zugeführter Luft gemischt wird. Dieses Benzin-Dampf-Luft-Gemisch wird dann in der Vorrichtung weitergeleitet und auf den Katalysator geführt, wo die Oxidation stattfindet. Die Kühlung des Katalysators und die Abführung der Verbrennungswärme erfolgt über einen Wärmetauscher.

[0004] Die DE 195 29 428.9 A1 beschreibt eine Vorrichtung zur katalytischen Verbrennung von Brennstoffen. Hierbei wird der Vorrichtung ein vorgemischtes Brennstoff-Luft-Gemisch zugeführt. Das Gemisch durchströmt einen äußeren Ringzylinder und tritt dann in einen ringförmigen Reaktionsspalt ein, in dem es an einer Katalysatorschicht auf dem Hochtemperaturlatentwärmespeicher umgesetzt wird nach dem durch einen Zündbrenner mit offener Flamme eine ausreichende Reaktionstemperatur erzielt wurde.

[0005] Hier erfolgt die Abführung der Verbrennungswärme über einen Wasserraum, in dem die Brennerstufe angeordnet ist. Weiterhin ist zusätzlich ein Latentwärmespeichermaterial vorhanden, das im flüssigen Zustand zirkuliert und so einen Wärmeaustausch bewirkt.

[0006] Die Vorrichtungen und Verfahren des Standes der Technik besitzen erhebliche Nachteile. Auf Grund der Verwendung von Zündbrennern mit offenen Flammen kann es zu Überhitzungen des Katalysators kommen, so daß der Katalysator zerstört wird. Weiterhin besteht bei der Einführung eines Brennstoff-Luft-Gemisches in den Brenner die Gefahr, daß eine vorherige Zündung des Gemisches erfolgt, was ebenfalls zu einer Zerstörung des Katalysators führen kann.

[0007] Ein weiterer wichtiger Aspekt der Verbrennung ist eine niedrige NO_x Emission. Die Voraussetzungen für eine niedrige NO_x Emission sind eine schnelle und homogene Vermischung der Verbrennungsgase mit Luft und weiterhin eine ausreichend lange Aufenthaltszeit der Verbrennungsgase in der Verbrennungskammer. Weiterhin hängt der Umwandlungsgrad des brennstoffgebundenen Stickstoffes zu NO_x im starken Maße vom globalen stöchiometrischen Verhältnis der Reaktionskomponenten, vom lokalen Mischungsverhältnis und von der Verbrennungstemperatur ab. Diese Voraussetzungen werden aus den oben erwähnten

Gründen bei den Vorrichtungen des Standes der Technik und den mit ihnen durchgeführten Verfahren nicht erfüllt, weshalb sie hohe NO_x -Emissionswerte besitzen.

[0008] Ein weiterer Nachteil des Standes der Technik ist es, daß der Katalysator bei nicht ausreichender Verdampfung des Brennstoffes durch flüssigen Brennstoff deaktiviert werden kann. Es tritt dann eine Verkokung im Katalysator auf, die den Katalysator schädigt.

[0009] Bei den Verfahren des Standes der Technik und den hierfür benutzten Vorrichtungen müssen weiterhin auch zur Verdampfung des Brennstoffes Vergaser und Düsen verwendet werden, die häufig zu warten sind und damit eine teure, kostenintensive, technischen Lösung darstellen.

[0010] Die technische Aufgabe der Erfindung lag daher darin, eine Vorrichtung und ein Verfahren zur katalytischen Oxidation von flüssigen Brennstoffen zur Verfügung zu stellen, bei dem Vergaser und Düsen für den Brennstoff nicht verwendet werden müssen, eine Überhitzung des Katalysators ausgeschlossen ist, keine vorherige Zündung des Brennstoff-Luft-Gemisches eintreten kann und auch eine Deaktivierung des Katalysators durch flüssigen Brennstoff vermieden wird.

[0011] Diese technische Aufgabe wird gelöst durch eine Vorrichtung zur katalytischen Oxidation von Brennstoffen, vorzugsweise flüssigen Brennstoffen, bestehend aus

- a. mindestens einer Strömungsstrecke mit Kapillarewirkung, in der ein flüssiger Brennstoff, vorzugsweise ohne äußeren Druck und nur durch die Kapillarewirkung transportiert wird und am Ende der Kapillare verdampft,
- b. einer Mischzone 3, in der der verdampfte Brennstoff mit zugeführter Luft gemischt wird,
- c. einem sich der Mischzone 3 anschließenden, für Gase durchströmbaren Katalysator 4, in welchem der gasförmige, mit Luft vermengte Brennstoff durch den Luftsauerstoff oxidiert wird und
- d. einem Wärmeübertragungsmittel 6 aus einem wärmeleitenden Material, vorzugsweise Metall, das die notwendige Energie zur Verdampfung des flüssigen Brennstoffes aus der Kapillare heraus über das die Kapillare bildende Material dem Brennstoff zuführt.

[0012] In einer bevorzugten Ausführungsform besteht die Vorrichtung aus mindestens zwei die Strömungsstrecke bildenden ineinander liegenden Rohren, 1, 2, einem Katalysator 4 und einer im Katalysator angeordneten Mischzone 3, wobei die Rohre 1, 2 einen Ringspalt bilden, der Katalysator 4 am einen Ende der Rohre 1, 2 angeordnet ist und die Rohre 1, 2 in die Mischzone 3 hineinragen.

[0013] Durch diese Anordnung ist es möglich, daß Brennstoff und Luft erst im Katalysator vermischt werden und vorher in der gesamten Vorrichtung getrennt geführt werden. Hieraus ergibt sich im Vergleich zum Stand der Technik der erhebliche Vorteil, daß eine vorherige Zündung des Gemisches oder eine Überhitzung des Katalysators durch die vorherige Oxidation ausgeschlossen ist. Ein weiterer Vorteil ist es, daß durch die Führung des Brennstoffes im Ringspalt, einer Kapillare, eine Verdampfung am Ende der Kapillare eintritt. Damit hat der gasförmige Brennstoff beim Austritt aus der Kapillare lediglich seine Verdampfungstemperatur, die jedoch unterhalb der Selbstentzündungstemperatur liegt. Weiterhin wird durch diese Maßnahme verhindert, daß flüssiger Brennstoff in den Katalysator eintritt und damit eine Verkokung und Deaktivierung des Katalysators verursacht wird.

[0014] Durch die Zuführung des Kraftstoffes mittels Kapillaren direkt in den Katalysator wird dieser durch die Ver-

dampfungswärme des Brennstoffes gekühlt. Damit kann die Temperatur am Ende der Kapillare nicht über die Siedetemperatur des Brennstoffes ansteigen. Die Kapillarwirkung sorgt dafür dass keine flüssigen Brennstoffe austreten können, da der Brennstoff drucklos an der Kapillare anliegt. Ein weitere Vorteil diese Systems ist es, daß auf komplexe Verdampfungssysteme wie Düsen und Vergaser vollständig verzichtet werden kann. In bevorzugter Weise wird die Wärme, die bei der Oxidation des Brennstoffes im Katalysator entsteht durch Wärmeleitung vom Katalysator in die Kapillare zurückgeführt. In einer bevorzugten Ausführungsform ist daher der Katalysator mit Mitteln zur Wärmeübertragung ausgestattet. Hierbei kann es sich um Einbauten aus wärmeleitendem Material handeln. In bevorzugter Weise ist weiterhin der Ringspalt zwischen den beiden Rohren mit für Flüssigkeiten durchlässigem Material, insbesondere Mineral-, Glas- oder Metallwatte gefüllt. In bevorzugter Weise ist der Ringspalt analog eines Wärmerohres geometrisch gestaltet oder durch Einbauten wie Glas- oder Metallwatte gefüllt.

[0015] Der Gasstrom wird durch das innere Rohr 1 in den Katalysator geleitet. Hierdurch wird der Gasstrom auf die Verdampfungstemperatur des Brennstoffes gebracht und die Gase werden gemischt. Die Temperatur in der Mischzone im Katalysator liegt unterhalb der Selbstentzündungstemperatur, so dass noch keine Reaktion stattfindet. Die so vorgemischten Gase gelangen dann weiter in den Katalysator, in dem die Reaktion stattfindet.

[0016] Die durch die Verdunstung des Brennstoffes aus der Kapillare entstandenen Verdunstungskälte wird bevorzugt zur Kühlung des Katalysators verwendet.

[0017] Als Katalysator wird bevorzugt ein Oxidationskatalysator, vorzugsweise aus Schaumkeramik, insbesondere mit dreidimensional vernetzten Poren, eingesetzt. Der Katalysator besitzt vorzugsweise ein Katalysatorvolumen von $8 \times 10^6 \text{ mm}^3$. Derartige Katalysatoren besitzen vorzugsweise Katalysatorgrößen von 20 bis 100 mm. Sie sind mit Edelmetallen, vorzugsweise mit Platinmetallen, belegt, in einer Menge von 0,1 bis 2 Gew.-%, der Luftdurchsatz beträgt 0,8 bis $4,5 \text{ m}^3/\text{h}$, vorzugsweise $3,4 \text{ m}^3/\text{h}$, der Feuerungswirkungsgrad liegt üblicherweise im Bereich von 91 bis 95%, vorzugsweise bei 94% und der Brennstoffdurchsatz liegt bei 10 bis 250 g/h , vorzugsweise bei 180 g/h .

[0018] Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur katalytischen Oxidation von Brennstoffen, wobei ein flüssiger Brennstoff, vorzugsweise ohne äußeren Druck und nur durch die Kapillarwirkung, durch eine Strömungsstrecke mit Kapillarwirkung transportiert wird und am Ende der Kapillare verdampft, der verdampfte Brennstoff in einer Mischzone mit zugeführter Luft gemischt und über einen für Gas durchströmbar Katalysator geleitet wird, wo der mit Luft vermengte Brennstoff durch den Luftsauerstoff oxidiert wird, wobei die notwendige Energie zur Verdampfung des flüssigen Brennstoffes aus der Kapillare heraus über das die Kapillare bildende Material dem Brennstoff zugeführt wird.

[0019] In einer besonderen Ausführungsform wird die durch die Verdampfung des Brennstoffes erzeugte Verdunstungskälte zur Kühlung des Katalysators verwendet.

[0020] In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform wird die durch die Reaktion im Katalysator erzeugte Wärme mittels geeigneter Wärmeübertragungsmedien in den Ringspalt geführt und zur Verdampfung des Brennstoffes eingesetzt. Diese Wärmeübertragungsmittel bestehen bevorzugt aus wärmeleitendem Material, besonders bevorzugt aus Metall.

[0021] Es ist weiterhin bevorzugt, daß die Austrittstemperatur des Brennstoffes aus der Strömungsstrecke mit Kapillarwirkung, vorzugsweise dem Ringspalt, unterhalb der

Selbstentzündungstemperatur des Brennstoffes liegt.

[0022] Das Prinzip des erfindungsgemäßen Verfahrens liegt darin, daß der Brennstoff durch die Kapillare direkt in den Katalysator befördert wird, ohne vorher mit Luft vermischt zu werden. Durch diese getrennte Zuführung auf den Katalysator werden die wesentlichen Vorteile des erfindungsgemäßen Verfahrens erzielt, nämlich die Vermeidung einer vorherigen Zündung des Gemisches und die Vermeidung einer Überhitzung des Katalysators. Im Stand der Technik werden die Brennstoff-Luft-Gemische üblicherweise über einen relativ langen Weg innerhalb des Brenners geführt, so daß hier eine erhebliche Gefahr besteht, daß es zu einer vorherigen Zündung des Gemisches kommt.

[0023] Ein weiterer wesentlicher Effekt der Erfindung wird erzielt durch die Verdampfung des Brennstoffes aus einer Kapillare direkt in den Katalysator. Hierdurch wird einerseits der Einsatz von Düsen und Vergasern für den Brennstoff entbehrlich, da durch die Kapillarwirkung ein ständiger Zustrom des Brennstoffes erfolgt. Weiterhin wird auch gewährleistet, daß der verdampfenden Brennstoff nicht die Selbstentflammungstemperatur erreicht, sondern lediglich die Verdampfungstemperatur, die üblicherweise unterhalb der Selbstentzündungstemperatur liegt. Darüber hinaus kann die bei der Verdampfung entstehende Verdunstungskälte sinnvoll zur Kühlung des Katalysators bzw. umgekehrt die im Katalysator erzeugte Wärme zur Verdampfung des Brennstoffes in der Kapillare eingesetzt werden.

[0024] Fig. 1 soll die Erfindung näher erläutern. Die Ziffern 1 und 2 zeigen die ineinander liegenden Rohre, die den Ringspalt 5 bilden. Durch den Ringspalt wird der flüssige Brennstoff zugeführt, durch das Innenrohr die Luft. In der Mischzone tritt der anfangs flüssige Brennstoff in gasförmiger Form ein. Erst in der Mischzone 3, die sich im Katalysator befindet, wird der Brennstoff mit der Luft gemischt. Der Transport des Brennstoffes in der Kapillare erfolgt ohne Pumpen oder Düsen, sondern allein durch die Kapillarwirkung des am Ende der Kapillare verdampfenden Brennstoffes. Das Katalysatormaterial ist bevorzugt mit Wärmeübertragungsmitteln 6 umgeben, die die im Katalysator entstehende Wärme ableiten und dem oberen Teil des Ringspalt z zuführen, wodurch sie die Verdampfung des Brennstoffes beschleunigen. Die Wärmeübertragungsmittel sind bevorzugt auf die erforderliche Verdampfungsenthalpie des verwendeten Brennstoffes abgestimmt.

[0025] Fig. 2 zeigt eine vergrößerte Ansicht des Katalysators 4 mit der Mischzone 3 und dem Wärmeübertragungsmittel 6.

[0026] Fig. 3 zeigt eine Querschnittsansicht, wobei das Innenrohr mit der Ziffer 1 und das Außenrohr mit der Ziffer 2 bezeichnet ist. Das Außen- und Innenrohr sind ineinander geschoben und bilden den Ringspalt 5.

[0027] Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren und der erfindungsgemäßen Vorrichtung ist es möglich eine katalytische Oxidation von flüssigen Brennstoffen vorzunehmen, mit geringem NO_x Anteil im Abgas. Dadurch, daß bei dem erfindungsgemäßen Verfahren und der Vorrichtung keine Düsen oder Pumpen verwendet werden müssen, besteht die Möglichkeit neuartige Brennerkonzepte zu entwickeln.

[0028] Es besteht ferner die Möglichkeit, Synthesegas durch zusätzliche Einleitung von Wasser zu erzeugen, wobei dann der Brenner als autothermer Reformier arbeitet. Das Wasser kann dabei beispielsweise durch die Strömungsstrecke, vorzugsweise die Ringspalte, eingeführt werden. Autotherme Reformier werden zur Herstellung von Wasserstoff eingesetzt.

- 1 Innenrohr
- 2 Außenrohr
- 3 Mischzone im Katalysator
- 4 Katalysator
- 5 Ringspalt
- 6 Wärmeübertragungsmittel

Patentansprüche

10

1. Vorrichtung zur katalytischen Oxidation von Brennstoffen bestehend aus
 - a. mindestens einer Strömungsstrecke mit Kapillarwirkung, in der ein flüssiger Brennstoff, vorzugsweise ohne äußeren Druck und nur durch die Kapillarwirkung transportiert wird und am Ende der Kapillare verdampft, 15
 - b. einer Mischzone 3, in der der verdampfte Brennstoff mit zugeführter Luft gemischt wird, 20
 - c. einem sich der Mischzone 3 anschließenden, für Gase durchströmbaren Katalysator 4, in welchem der gasförmige, mit Luft vermengte Brennstoff durch den Luftsauerstoff oxidiert wird, 25
 - d. einem Wärmeübertragungsmittel 6 aus einem wärmeleitenden Material, vorzugsweise Metall, das die notwendige Energie zur Verdampfung des flüssigen Brennstoffes aus der Kapillare heraus über das die Kapillare bildende Material dem Brennstoff zuführt. 30
2. Vorrichtung nach Anspruch 1, bestehend aus mindestens zwei die Strömungsstrecke bildenden ineinander liegenden Rohren, 1, 2, einem Katalysator 4 und einer im Katalysator angeordneten Mischzone 3, wobei die Rohre 1, 2 einen Ringspalt bilden, der Katalysator 4 am einen Ende der Rohre 1, 2 angeordnet ist und die Rohre 1, 2 in die Mischzone 3 hineinragen. 35
3. Vorrichtung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysator 4 Mittel zur Wärmeübertragung 6 besitzt. 40
4. Vorrichtung nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysator 3 Einbauten aus wärmeleitendem Material besitzt.
5. Vorrichtung nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysator in wärmeleitendes Material eingefaßt ist. 45
6. Vorrichtung nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß im Ringspalt 5 für Flüssigkeiten durchlässiges Material, insbesondere Mineral-, Glas- oder Metallwatte vorhanden ist. 50
7. Vorrichtung nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysator ein Oxidationskatalysator, vorzugsweise aus Schaumkeramik, insbesondere mit dreidimensionalen vernetzten Poren ist.
8. Vorrichtung nach den Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß Mittel zur Zuführung von Wasser, gegebenenfalls über einen oder mehrere Ringspalte vorhanden sind. 55
9. Verfahren zur katalytischen Oxidation von Brennstoffen, wobei ein flüssiger Brennstoff, vorzugsweise ohne äußeren Druck und nur durch die Kapillarwirkung, durch eine Strömungsstrecke mit Kapillarwirkung transportiert wird und am Ende der Kapillare verdampft, der verdampfte Brennstoff in einer Mischzone mit zugeführter Luft gemischt und über einen für Gas durchströmbaren Katalysator geleitet wird, wo der mit Luft vermengte Brennstoff durch den Luftsauerstoff oxidiert wird, wobei die notwendige Energie zur Ver- 60 65

dampfung des flüssigen Brennstoffes aus der Kapillare heraus über das die Kapillare bildende Material dem Brennstoff zugeführt wird.

10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß die durch die Verdampfung des Brennstoffes erzeugte Verdunstungskälte zur Kühlung des Katalysators verwendet wird.

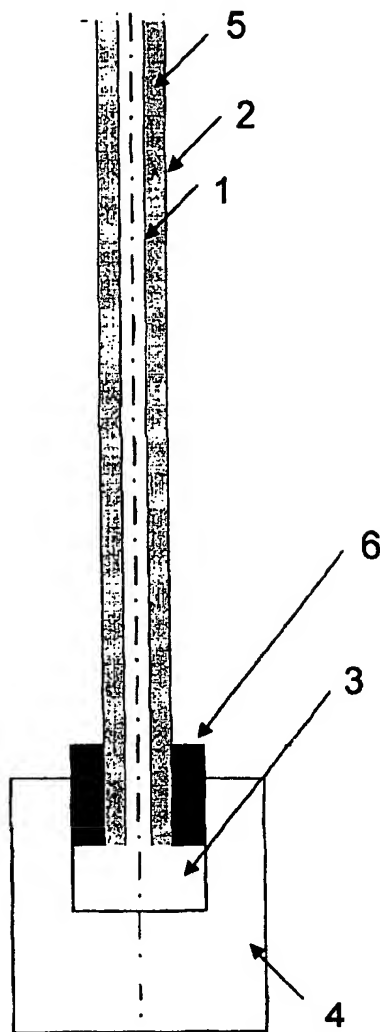
11. Verfahren nach den Ansprüchen 9 oder 10, dadurch gekennzeichnet, daß die durch die Oxidation im Katalysator erzeugte Wärme mittels geeigneter Wärmeübertragungsmittel aus wärmeleitendem Material, vorzugsweise Metall, in den Ringspalt geführt wird und zur Verdampfung des Brennstoffes eingesetzt wird.

12. Verfahren nach den Ansprüchen 9 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich Wasser zugeführt wird, so daß der Brenner als Reformier betrieben werden kann.

13. Verfahren nach den Ansprüchen 9 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß die Austrittstemperatur des Brennstoffes aus der Strömungsstrecke mit Kapillarwirkung unterhalb der Selbstentzündungstemperatur des Brennstoffes liegt.

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

Fig. 1



BEST AVAILABLE COPY

Fig. 2

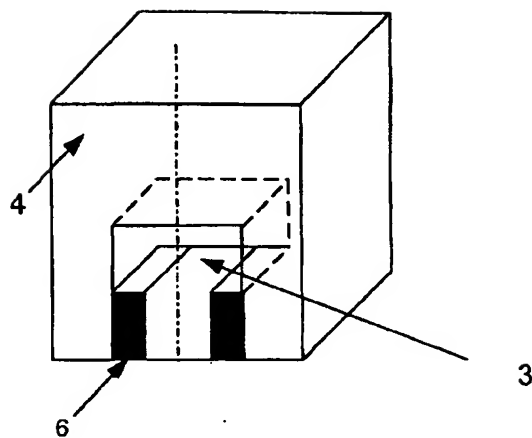


Fig. 3

